

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-275556

(43)Date of publication of application : 25.09.2002

(51)Int.Cl.

C22C 1/10

B22D 19/14

C04B 41/88

(21)Application number : 2001-071766

(71)Applicant : TAIHEIYO CEMENT CORP

(22)Date of filing : 14.03.2001

(72)Inventor : TAKEI YOSHIBUMI

TSUTO HIROYUKI

SHIOGAI TATSUYA

AOKI ICHIRO

(54) METAL-CERAMIC COMPOSITE MATERIAL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a metal-ceramic composite material containing extremely little unreacted carbon and having high strength, high rigidity and high thermal conductivity.

SOLUTION: The metal-ceramic composite material is obtained by allowing molten Si to permeate SiC powder having particles having ≤ 3 aspect ratio by $\geq 60\%$ in the whole particles.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-275556

(P 2 0 0 2 - 2 7 5 5 5 6 A)

(43) 公開日 平成14年9月25日 (2002. 9. 25)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード (参考)
C22C 1/10		C22C 1/10	G 4K020
B22D 19/14		B22D 19/14	A
C04B 41/88		C04B 41/88	U

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全4頁)

(21) 出願番号	特願2001-71766 (P 2001-71766)	(71) 出願人	000000240 太平洋セメント株式会社 東京都千代田区西神田三丁目8番1号
(22) 出願日	平成13年3月14日 (2001. 3. 14)	(72) 発明者	武井 義文 千葉県佐倉市大作二丁目4番2号 太平洋 セメント株式会社内
		(72) 発明者	津戸 宏之 千葉県佐倉市大作二丁目4番2号 太平洋 セメント株式会社内
		(72) 発明者	塩貝 達也 千葉県佐倉市大作二丁目4番2号 太平洋 セメント株式会社内
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 金属-セラミックス複合材料

(57) 【要約】

【課題】 未反応カーボンの極めて少ない、高強度、高剛性、高熱伝導性である金属-セラミックス複合材料を提供する。

【解決手段】 アスペクト比で3以下の粒子数が全体の60%以上であることを特徴とするSiC粉末に溶解したSiを浸透させて金属-セラミックス複合材料を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 SiとSiC粉末とを複合した複合材料であって、該SiC粉末が、アスペクト比で3以下の粒子数が全体の60%以上であることを特徴とするSiC粉末強化Si基複合材料。

【請求項2】 SiC粉末が、平均粒径が1~20 μ mの範囲であり且粒度分布において25 μ m以上の粒径をもつ粒子の割合が3%以下であり、且、複合材料中のSiC充填率が60vol%以上75vol%以下であることを特徴とする請求項1記載のSiC強化Si基複合材料。

【請求項3】 未反応カーボンの含有量が0.1重量%以下であることを特徴とする請求項1または2に記載のSiC粉末強化Si基複合材料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、金属に強化材を複合させた金属-セラミックス複合材料及びその製造方法に関し、特に金属をSiとした金属-セラミックス複合材料及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】技術革新が急速に進む中で、宇宙開発、エネルギー、原子力等の分野においては、その構造部材として耐熱性が要求とされる中高温(200~2000℃)の環境下では、高強度、高靱性、耐衝撃性、耐食性、耐酸化性、耐放射線性等の特性を有する材料が要求されている。現在、耐熱性に優れた材料としてはセラミックスがあり、その中で特に優れている炭化珪素、窒化珪素等のセラミックスがあるが、その製造過程から、大型の部材の作製が困難であるという欠点を有している。

【0003】一方、SiC等のセラミックスを強化材とし、マトリックスをSiとした金属-セラミックス複合材料(通称SiC粉末強化Si基複合材料、以下単に複合材料と記載することがある)が開発されている。この材料は、セラミックスと融点の高い金属とをミクロンオーダーで複合化させた複合材料であるので、先のセラミックス同様耐熱性に優れており、特に1000℃付近においても高い剛性を有している。

【0004】その製造については、カーボンあるいは、焼成すればカーボンとなる樹脂等でSiC粉末のプリフォームを成形し、そのプリフォームに熔融Siを含浸させると同時にプリフォーム中のCとSiとを反応させSiCを生成させる、いわゆる反応焼結法によって生成されたSiCと残余のSiとを共存させることにより複合材料を作製する方法、もしくは、SiC等の粉末とカーボンあるいは焼成すればカーボンとなる樹脂等でプリフォームを成形し、そのプリフォームに熔融Siを含浸させると同時にプリフォーム中のカーボン(以後Cと表記)とSiとを反応させSiCを生成させ、この生成さ

れたSiCと残余のSiとあらかじめ含んでいるSiC等とを共存させることにより複合材料を作製する方法によって製造されている。この製造方法は、成形体と焼結体との寸法が殆ど変わらないので複雑な形状の精密部品や大型部材を作ることができ、また製造コストも低いので工業化プロセスとしては極めて有利である。

【0005】こうした製造方法で作製された複合材料は、高温強度が高い、剛性が高い、熱伝導率が高い、耐酸化性に優れる、大型部材の作製が比較的容易である等の特徴を有している。近年では特にC製のプリフォームに熔融したSiを含浸させてSiC化する方法、広い粒度分布のSiC粉末を用いてプリフォームを作製する方法等によって、複合材料中のSiC充填率を高め、部材の高剛性化・高熱伝導化が図られている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、こうした方法により作製された複合材料中には、未反応のCが残存する、または粗粒配合によって強度が低下する等の問題があった。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上述した金属-セラミックス複合材料が有する課題に鑑みなされたものであって、その目的は、高強度、高剛性、高熱伝導性である金属-セラミックス複合材料を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、上記目的を達成するため鋭意研究した結果、強化材であるSiC粒子の粒径および粒子形状を所定の範囲内とすることにより、プリフォーム中のSiCの充填率を向上させることが可能となり、未反応Cのほとんど無い高剛性、高熱伝導性、且高強度のSiC強化Si基複合材料が得られることの知見を得て本発明を完成するに至った。

【0009】すなわち本発明は、(1)SiとSiC粉末とを複合した複合材料であって、該SiC粉末が、アスペクト比で3以下の粒子数が全体の60%以上であることを特徴とするSiC粉末強化Si基複合材料(請求項1)であり、(2)SiC粉末が、平均粒径が1~20 μ mの範囲であり且粒度分布において25 μ m以上の粒径をもつ粒子の割合が3%以下であり、且、複合材料中のSiC充填率が60vol%以上75vol%以下であることが好ましく(請求項2)、また、(3)未反応カーボンの含有量が0.1重量%以下であることが好ましい(請求項3)。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。本発明においては強化材としてSiC粉末を用いるが、該SiC粉末は、アスペクト比で3以下の粒子数が全体の60%以下であることを要する。特に、アスペクト比で3以下の粒子数が全体の60%以下であって、

10

20

30

40

50

平均粒径が1~20 μ mの範囲であり且粒度分布において25 μ m以上の粒径をもつ粒子の割合が3%以下であるものが好適である。アスペクト比が3以上である粒子数が60%を越えると、SiC粉末の充填率が低く、十分な剛性を有する複合材料が得られない。また、平均粒径が20 μ mより大きい場合、または25 μ m以上の粒子の割合が3%より大きいと、複合材料の強度が低下し、目的の強度が得られない。また、平均粒径が1 μ m未満である場合、Siの含浸不良が生じ易くなる。

【0011】本発明においては、マトリックスとしてSiを用いる。これは特に組成を限定するものではなく、市販のものが使用できる。複合材料の剛性や熱伝導率を高く維持するためには、不純物が少ないものが好ましい。

【0012】SiC粉末によりプリフォームを形成し、それに溶融させたSiを含浸させることにより、本発明のSiC粉末強化Si基複合材料を得ることができるが、この際、SiCの充填率（部材全体に対するSiCの体積%）が60vol%以上75vol%以下であることが好ましい。充填率が60vol%未満であると、十分な剛性が得られず、逆に75vol%より大きいと、部材中に緻密でない部分が生じ易い。

【0013】SiCの充填率は、SiCの粒形や平均粒径等を上述のようにすることにより制御することができる。なお本発明においては、本部材中のSiC充填率はプリフォームに含まれるC（含浸助材や有機バインダーに由来する）とSiとの反応によって生成するSiCも含めて考えるが、プリフォームに含まれるCの量が多すぎると未反応のCが生じやすく、逆に少なすぎると含浸不良となりやすい。適切なCの量としては、SiCに対して1~10重量%が好ましい。

【0014】本発明の製造方法をさらに詳しく述べると、上記のようなSiC粉末にバインダーとしてフェノール樹脂やフラン樹脂などの有機バインダーやアルミナゾル等の無機バインダーを添加し、また、必要に応じて含浸助材であるC源や溶媒等（仮焼するとCを生ずる物質であり、有機バインダーやカーボンブラック等が適当である）を添加し、鋳込み成形法やセディメントキャスト法等によりSiC充填率が60~75vol%のプリフォームを形成する。得られたプリフォームにSiを接触させ、真空中または不活性雰囲気中で1500~1700℃に加熱し、適切な時間保持して成形体中にSiを溶融含浸させることにより、SiC強化Si基複合材料が得られる。

【0015】上述のような方法により、未反応Cが0.1重量%以下と極めて小さいSiC強化Si基複合材料を作製することができる。このことにより、曲げ強度320MPa以上、ヤング率310GPa以上、熱伝導率が180W/mK以上という高強度、高剛性、高熱伝導率を達成することができる。

【0016】

【実施例】以下、本発明の実施例を比較例と共に具体的に挙げ、本発明をより詳細に説明する。

（実施例1）

（1）複合材料の作製

強化材として独ESK（ELECTROSCHMELTZWERK KEMPTEN GMBH）社の市販SiC粉末（C#800-D DARK）を用い、これにフェノール樹脂（群衆化学社製）および平均粒径が0.1 μ mのカーボンブラックおよび分散剤、さらにイオン交換水を添加しスラリーとした。添加量は、SiC粉末100重量部に対し、イオン交換水70重量部、フェノール樹脂35重量部、カーボンブラックを10重量部とした。得られたスラリーを型に流し込み、水分を除去した後、150℃に加熱して樹脂を硬化させた。得られた成形体を加工して、50×50×H10mmのプリフォームを得た。なお、このプリフォーム中に含まれるCは、除去する水分とともに失われるCおよびフェノール樹脂から発生するCを考慮すると、SiCに対して5重量%となる。得られたプリフォームと金属Siとを接触させ、真空中で1600℃の温度で3時間保持することによって溶融Siをプリフォーム中に含浸させ、複合材料を作製した。

（2）評価

得られた複合材料を研削加工により3×4×40mmの試験片とし、得られた試験片のヤング率を共振法で（JIS-R1602）、曲げ強度を4点曲げ強度試験（JIS-R1601）により測定した。また、熱伝導率の測定は、レーザーフラッシュ法による測定（JIS-R1611）を行った。また、複合材料中の未反応のCの量は、複合材料を水酸化ナトリウム水溶液で溶解した後、残部をJIS-R6124に従って測定した。

【0017】（実施例2）SiC粉末としてC#700-D DARK（独ESK社製、平均粒径17 μ m）である以外は実施例1と同様の方法により複合材料を作製し、評価を行った。

【0018】（比較例1）SiC粉末としてGC#400（信濃電気精錬製、GP#400）である以外は実施例1と同様の方法により複合材料を作製し、評価を行った。

【0019】（比較例2）SiC粉末としてGC#600とGC#1000（信濃電気精錬製、GP#600、GP#1000）とを1:1で混合した混合粉末を用いた以外は実施例1と同様の方法で複合材料を作製し、評価を行った。

【0020】（比較例3）SiC粉末としてGC#2000（信濃電気精錬製、GP#2000）を用いた以外は実施例1と同様の方法で複合材料を作製し、評価を行った。

【0021】（比較例4）SiC粉末としてGC#80

0 (信濃電気精錬製、GP # 800) を用い、これに、フェノール樹脂 (群栄化学社製) および活性炭を混合し、フィルタープレス成形により成形し、加熱することによって成形体を得た。それぞれの混合割合は、SiC粉末100重量部に対して、フェノール樹脂100重量部、活性炭120重量部とした。得られた成形体を加工して、50×50×H10mmのプリフォームを得た。このプリフォーム中に含まれるCはSiCに対して17

0重量%となる。このプリフォームに実施例1と同様にしてSiを含浸させ、評価を行った。

【0022】実施例および比較例1～3それぞれにつき、用いたSiC粉末の粒度、SiCの充填率および複合材料の評価結果を表1に示す。

【0023】

【表1】

	SiC 粉末			複合材料				
	平均 粒径	25μm 以上の粒 子の割合	アスペクト 比3以下の 粒子数の割合	SiC充 填率	ヤング 率	4点曲 げ強度	熱伝導率	未反応C量
	μm	%	%	vol%	GPa	MPa	W/mK	wt%
実施例1	14	1	70	65	330	325	185	0.1以下
実施例2	17	3.5	65	65	330	300	185	0.1以下
比較例1	20	50	30	55	288	230	173	0.1以下
比較例2	18	6	25	64	282	200	170	0.1以下
比較例3	7	0	40	60	280	250	170	0.1以下
比較例4	14	1	80	77	350	180	160	3

【0024】実施例1では、使用したSiC粉末の平均粒径、粒度分布、アスペクト比、および複合材料中のSiCの充填率が請求範囲内であったことから、ヤング率、4点曲げ強度、熱伝導率ともに良好なものであった。実施例2では、SiC粉末が、25μm以上の粒径をもつ粒子の割合が3%を越えていたことから、4点曲げ強度が若干低下したが、それ以外は良好な性状を示した。比較例1では、平均粒径が請求範囲外であったため、強度が低かった。比較例2では、25μm以上の粒子の割合が3%を越えていたため、4点曲げ強度が若干低かった。比較例3では、粒子のアスペクト比が3以下

の粒子数の割合が低かったため、充填率が低下し、ヤング率が低かった。比較例4では、未反応のCの割合が多く、強度が弱かった。また、比較例1～4では、いずれも熱伝導率が180W/mKを下回っていたのに対し、実施例1～2ではこれを上回る熱伝導率が得られた。

【0025】

【発明の効果】以上のように、本発明を用いることにより、SiC強化Si基複合材料において未反応Cの含有量を低いレベルに抑えることができ、高ヤング率且高強度且高熱伝導性の複合材料を作製することができる。

フロントページの続き

(72)発明者 青木 一郎

千葉県佐倉市大作二丁目4番2号 太平洋
セメント株式会社内

Fターム(参考) 4K020 AA22 AC07 BA05 BB22